

氏名	伊崎慶之
授与学位	博士(工学)
学位授与年月日	平成13年10月10日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第2項
最終学歴	昭和59年3月 豊橋技術科学大学大学院工学研究科修士課程 電気・電子工学専攻 修了
学位論文題目	大型熔融炭酸塩型燃料電池スタックの開発 と発電プラントの実証に関する研究
論文審査委員	主査 東北大教授 内田 勇 東北大教授 板谷 謹悟 東北大教授 三浦 隆利

## 論文内容要旨

### 第1章 序論

第1章序論では、国内外における熔融炭酸塩型燃料電池(MCFC)の開発の背景と経緯について述べるとともに、本研究の目的を明らかとした。MCFCは、熔融塩で仕切られたアノードとカソードに燃料と酸化剤ガスを各々供給し、各電極での電気化学反応を利用して燃料の持つ化学エネルギーを直接電気エネルギーに変換することが可能な発電装置である。MCFC発電は、650℃近傍の高温動作で、直接発電に加え、高温の排熱を利用した複合発電による高効率(50%以上)が期待でき、環境面からも炭酸ガスやNOx排出量の削減等による環境負荷の低減ならびに炭酸ガスの濃縮と言う観点からも期待されている。また、原燃料として、天然ガスや石炭ガス化ガス等の多様な燃料の利用が期待でき、小型分散電源から大型集中電源への適用による電源の多様化も期待できることから、21世紀の電気事業用電源としての関心が高まっている。

我が国におけるMCFCの開発は、昭和56年からの国の長期に及ぶ開発で、世界の先導的な立場と成りつつあり、加圧外部改質型MCFC発電プラントの早期実用化が期待されている。

そのためには、MCFC小型単セル(セル反応面積100cm<sup>2</sup>)等での要素・基礎研究と並行して、プラント化のためのMCFCの大型化(セル反応面積1m<sup>2</sup>)ならびに積層化(スタック化)を実現し、大型加圧スタックにおける基本運転特性を明らかにする必要がある。さらに、大型スタックを用いた加圧MCFC発電プラントでの実証を行い、加圧外部改質型MCFC発電プラントの実現性の見通しとプラント化への課題を明らかにし、早期実用化のための効率的な研究開発を継続的に行う必要があった。

本研究では、国の開発に参画・支援し、加圧MCFC発電プラントの実現性を技術的に

見通すことを目的に、加圧MCF Cスタックの大型化と大型スタックの運転特性の解明を通してその技術的な検証を行い、国内初の1000kW級加圧MCF C実発電プラントでの実証を行った。また、早期実用化のために不可欠な大型スタックの長寿命化ならびに低コスト化についての方向性を明らかとする目的で、中面積（セル反応面積0.5m<sup>2</sup>以下）スタックでの要素技術の検討・検証を行った。

## 第2章 溶融炭酸塩型燃料電池スタックの基本構造と発電システムの基本構成

第2章では、まず、MCF Cの発電原理とスタックの基本構造について述べた。ガスマニホールドについては、セパレータの構造は複雑となるが、ガスシール等の観点から、外部マニホールド型スタックより実現性が高い内部マニホールド型スタックを本研究の対象とした。また、大型スタックの性能は、セル部材の性能に加えセパレータを中心とする構造にも左右されることから、スタック大型化のポイントとして、セパレータの大型化ならびに信頼性の向上が必要であることを述べた。さらに、大型スタックの運転特性の把握には、実スタックによる運転試験による特性の解明が不可欠であることを述べた。

次に、大型加圧MCF Cスタックの運転上の制約条件について述べ、MCF C発電システムの構成とプラント化に必要な主要機器と役割について示した。さらに、早期実現が期待される天然ガスを燃料とするプラントについては、加圧プラントとしての成立性（MCF C特有の炭酸ガスリサイクル）ならびにプラント化への課題抽出のため、プラントとしての検証が重要であることを述べた。

## 第3章 溶融炭酸塩型燃料電池スタックの大型化と運転特性の解明

第3章では、まず、大型スタックの基礎となる10kW級スタックを用いた検討を行い、大型スタックの試験装置ならびに運転試験方法を明らかにした。また、セパレータの大型化に伴う端部構造の改良を行い、プラントの実証に適用可能な大型セパレータ板を用いた大型加圧スタック（セル反応面積1m<sup>2</sup>×10セル）を実現し、大面積スタックの運転技術ならびに運転特性を明らかにした。プラントで想定される運転圧力5気圧、燃料利用率80%、カソード炭酸ガス利用率の高い領域（70～80%）でも、安定した運転性能が得られることを検証した。

さらに、同一の大型セルで構成した100kW級実規模スタック（セル反応面積1m<sup>2</sup>×102セル）を用いた運転研究を行い、運転特性の解明により、高積層化においても10kW級と同程度の運転特性が得られることを明らかとした。さらに、大型加圧スタックにおけるカソードガスリサイクルによる温度制御の安定性を実証した。

また、これら10kW級および100kW級スタックでの長期間運転特性の解明から、実用化のためのスタックの長寿命化への課題として、セパレータ内腐食面積の低減、セル内部でのニッケル短絡の抑制等の課題を明らかとした。

#### 第4章 1000kW級加圧溶融炭酸塩型燃料電池発電プラントの実証

第4章では、複数個の大型スタックを用いた国内初の1000kW級加圧MFC発電プラントの実証を行った。交流出力1000kWの達成により、MFC発電プラントの技術的な実現性を検証した。エネルギーフローの検討から、プラント効率45%を確認するとともに、天然ガスシステムでの炭酸ガスリサイクルの成立性ならびに実プラント条件におけるスタックの安定性を実証した。また、各大型スタックでの運転特性の比較から、複数個の大型スタックを用いた場合においても、各スタックおよびスタック内への燃料ガスの等配分が技術的に可能であること、複数個のスタックの温度制御を一つのカソードガスリサイクルで行えることを検証した。さらに、定常状態における大型スタックの信頼性およびプラントの安定性を検証した。また、運転実績から、プラント化への課題として、プラントでの放熱の低減、プラント内で発生するスタックからの炭酸塩の飛散と析出、さらには、実規模スタックにおけるスタック構造設計への課題も明らかとした。

#### 第5章 大型スタックの長寿命化・低コスト化のための要素技術の検討

第5章では、加圧MFC発電プラントの早期実用化に不可欠な大型加圧スタックの長寿命化への課題を中心に、今後のスタック技術に関する要素技術の方向性について検討を行った。まず、スタックの低コスト化、長寿命化ならびに高出力化の観点から、スタックでのセパレータ構造を中心に検討した。試作した中面積（セル反応面積 $0.5\text{m}^2$ ）スタックでの運転特性の解明から、セパレータの構成部材を低減したセンター板プレス加工セパレータの採用により、スタック長寿命化の課題の一つである運転時間に伴うセル内の電解質損失量が約 $1/2$ になることが分かり、大型スタックの長寿命化・低コスト化へ有効性を明らかとした。

セル長寿命化（ニッケル短絡の抑制）の観点から、Li/Na系電解質（ $\text{Li}_2\text{CO}_3/\text{Na}_2\text{CO}_3 = 52/48\text{mol}\%$ ）とLi/K系電解質（ $\text{Li}_2\text{CO}_3/\text{K}_2\text{CO}_3 = 62/38\text{mol}\%$ ）セルの混在する中面積（セル反応面積 $0.25\text{m}^2$ ）スタックを用いて検討した。その結果、5000時間におよぶ運転特性の解明により、Li/Na系電解質を用いた場合、電解質中のニッケルの析出量が約 $1/2$ となり、ニッケル短絡現象に伴う出力電圧の低下の抑制に有効であることが分かった。また、圧力特性の解明から、性能面でも加圧化により、Li/K系電解質と同程度の性能が得られることが分かった。これらから、セル長寿命化への課題であるニッケル短絡の抑制に対して、スタックレベルにおいても、Li/Na系電解質セルの適用がニッケル短絡抑制の一方策として有効であることを明らかにした。

さらに、信頼性の向上ならびに高性能化への基礎研究として、スタック内でのカソードのin-situ酸化過程の現象について、基材であるニッケル（板）を溶融塩中に半浸漬させた電極系での直接観察法による反応過程の現象を視覚的に検討した。In-situ酸化過程において、ニッケル板表面でのガスの発生を伴う激しい反応が起こることが明らかとなった。このことから、実際のスタックにおいても、in-situ酸化過程での現象が電極表面構造に影響

響を与えることが示唆され、in-situ 酸化条件の重要性を提言した。

## 第6章 総括

第6章では、以上の結果から、本研究での成果をまとめた。加圧MCF Cスタックの大型化を実現し、大型スタックの運転技術、運転特性ならびに加圧MCF C発電プラントの技術的な成立性を明らかにすることができた。また、実用化に向けての長寿命化・低コスト化スタックの要素技術の方向性を明らかにすることができた。特に、今回の1000kW級加圧MCF C発電プラントの実証は、国内外のMCF C開発ならびに早期実現を期待するユーザに対しても大きなインパクトとなったものとする。

## 審査結果の要旨

燃料電池発電は、昨今の地球温暖化を中心とする地球環境問題を背景に世界的に注目を集めている電気化学の原理を応用した発電技術である。特に、熔融炭酸塩型燃料電池(MCFC)は、21世紀においても電気事業における当面のエネルギー資源である天然ガスや石炭等の化石燃料を原燃料とした高効率(50%以上)の発電プラント(小型分散電源から大型集中電源)への適用が期待され、その早期実用化が望まれている。そのためには、MCFCの大型化、プラント化による技術的な実証と実用化のための課題の抽出が不可欠である。本研究は、プラント化に不可欠なMCFCスタックの大型化を実現し、大型スタックの運転評価方法ならびに運転特性の解明・検討、これらを基にした国内初の1000kW級MCFC発電プラントの実証、さらには、実用化のためのスタック長寿命化への方策について実験的な検討を行ったもので、全編6章から成る。

第1章は、序論であり、MCFC開発の背景、国内外の開発経緯を要約し、本研究の目的と意義を述べる。

第2章では、まず、MCFCスタックの構造ならびにMCFC発電システムの構成について述べ、スタックの大型化ならびにプラント化での検討・評価項目を整理し、実証の必要性を示している。

第3章では、それまで0.3m<sup>2</sup>程度であったスタックの単セル面積を1m<sup>2</sup>までの大型化を実現し、10kW級加圧大型スタックの運転技術と共に大型スタックにおける運転特性を解明し、さらに100kW級実規模スタックにおいてもその運転特性を明らかとした。これらは、第4章で述べられる国内初の1000kW級加圧MCFC発電プラントの基本設計等に反映されたと共に、第5章で述べられる実用化のための長寿命化・低コスト化スタックの開発の基礎となっており、工学的な意義は大きい。

第4章では、国内初の1000kW級加圧MCFC発電プラントの実証に従事し、実プラントとしてのMCFC発電の検証ならびに第3章で述べている100kW級実規模スタック複数個から構成される実電池システムのプラント内での運転特性を明らかにした。また、実証を通じて、プラントの早期実用化のための具体的な技術的な課題が明らかとなった。これらは、MCFC発電プラントの実現性を世の中に示すと共に、発電プラントの早期実用化への開発の推進と方向性を与えている。

第5章では、大型スタック実用化のための長寿命化を中心に検討している。第3章の運転特性の解明で明らかになったセパレータ板内での腐食による電解質の損失低減と電解質板内でのニッケル析出による内部短絡抑制の課題について、セパレータ板構成の簡素化および熔融塩組成の変更(Li/K系からLi/Na系へ)による効果を中面積スタックで立証しており、この成果は、現在の国の進める長寿命化スタック開発に引き継がれている。

以上要するに本論文は、MCFC発電プラントの中核であるMCFCスタックの大型化を実現し、大型加圧スタックの運転技術ならびに運転特性を明らかにし、1000kW級MCFC発電プラントでの実証を行い、さらに、早期実用化のための長寿命スタックの方向性ならびにプラント化への課題を明らかにしたもので、MCFC発電プラントの早期実用化とMCFCの工学的な発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。